

УДК 535.182+535.2+535.34

## БИФОТОННАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ СВЕРХИЗЛУЧАТЕЛЬНОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА

*В.О. Сербиненко, А.А. Калачёв*

### Аннотация

Анализируются возможности использования время-разрешенных корреляционных измерений с помощью бифотонных полей, создаваемых в процессе спонтанного параметрического рассеяния света, для исследования прохождения однофотонных волновых пакетов через оптически толстые резонансные среды.

**Ключевые слова:** спонтанное параметрическое рассеяние, сверхизлучение, фотон.

---

### Введение

Целью настоящей работы является теоретическое исследование процессов распространения и сверхизлучательного рассеяния вперед однофотонных волновых пакетов в оптически плотных резонансных средах (примесных кристаллах) и разработка новых методов бифотонной спектроскопии, позволяющих извлекать информацию о параметрах оптически толстых резонансных сред из результатов корреляционных измерений.

Идея бифотонной спектроскопии [1–3] состоит в следующем. Для измерения спектров поглощения используются коррелированные пары фотонов, или бифотоны, рождающиеся в процессе спонтанного параметрического рассеяния (СПР) света в нелинейном кристалле. В процессе СПР плоская волна накачки возбуждает квадратично нелинейный кристалл, в котором случайным образом (с эффективностью порядка  $10^{-7} \div 10^{-11}$ ) происходит уничтожение высокочастотного фотона накачки и одновременное рождение двух низкочастотных фотонов, называемых обычно холостым и сигнальным. В зависимости от поляризации сигнального и холостого фотонов, формирующих бифотон, различают СПР типа I, когда бифотоны в паре поляризованы одинаково (линейно), и СПР типа II, когда поляризации фотонов в паре являются ортогональными. При определенной ориентации оптической оси кристалла пара фотонов может испускаться коллинеарно, в том же направлении, что и излучение накачки. Далее будем рассматривать коллинеарный режим СПР типа II, поскольку в этом случае рождающиеся фотоны легко разделяются поляризационным светоделителем. Один фотон из каждой пары (например, холостой) проходит через образец, а второй (сигнальный) – через монохроматор. Затем фотоны регистрируются при помощи двух фотодетекторов и схемы совпадений. Варьируя частоту сигнальных фотонов с помощью монохроматора в пределах ширины спектра СПР, мы изменяем частоту холостых фотонов, вносящих вклад в скорость совместного счета. В результате зависимость скорости совпадений от длины волны воспроизводит форму линии поглощения образца. Достоинствами бифотонной спектроскопии является, в частности, возможность проведения измерений с предельно низкими интенсивностями излучения (однофотонное возбуждение), что важно при работе с биологическими объектами, и существенное увеличение отношения сигнал/шум (за счет измерения скорости совпадений, а не интенсивности проходящего сигнала) [3].

В настоящей работе предлагается существенным образом расширить возможности бифотонной спектроскопии и сделать ее время-разрешенной. Основная идея заключается в измерении временной формы однофотонного волнового пакета, проходящего через оптически плотную резонансную среду, что, в свою очередь, позволяет получать информацию о скорости фазовой релаксации в среде и ее оптической толщине. Использование оптически плотной резонансной среды необходимо для повышения вероятности коллективного (сверхизлучательного) рассеяния фотона вперед и, следовательно, эффективности корреляционных измерений.

## 1. Основные формулы

В случае непрерывной накачки и вырожденного коллинеарного режима СПР состояние бифотонного поля можно записать в виде [4, 5]:

$$|\psi\rangle = |0\rangle + \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega F(\omega) a_s^\dagger(\omega_0 + \omega) a_i^\dagger(\omega_0 - \omega) |0\rangle, \quad (1)$$

где  $|0\rangle$  – вакуумное состояние поля,  $a_s^\dagger(\omega)$  и  $a_i^\dagger(\omega)$  – операторы рождения сигнальных и холостых фотонов соответственно,  $\omega_0$  – центральная частота бифотонного поля, которая в 2 раза меньше частоты накачки. Функция  $F(\omega)$ , называемая спектральной амплитудой бифотона, определяет спектральную ширину бифотонного поля и зависит от свойств нелинейного кристалла и типа синхронизма. Выражение (1) ясно показывает, что бифотонное поле обладает свойством частотной антикорреляции, которое и является основой бифотонной спектроскопии. В случае СПР II типа

$$F(\omega) \propto \frac{1}{l} \int_{-l}^0 dz e^{-i\tau_u \omega z/l}, \quad (2)$$

где  $\tau_u$  – разность времен прохождения сигнального и холостого фотонов через нелинейный кристалл длины  $l$ , обусловленная различием их групповых скоростей.

Временная форма бифотона на выходе из нелинейного кристалла определяется как фурье-образ спектральной амплитуды и в случае непрерывной монохроматической накачки зависит лишь от разности времен регистрации сигнальных и холостых фотонов на выходе из кристалла  $\tau = t_s - t_i$ :

$$F(\tau) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega e^{-i\omega\tau} F(\omega), \quad (3)$$

так что с учетом формулы (2)

$$F(\tau) \propto \tau_u^{-1} \Pi(\tau/\tau_u). \quad (4)$$

Здесь функция  $\Pi(\tau) = [\theta(\tau) - \theta(\tau - \tau_u)] \operatorname{sgn} \tau_u$  равна единице внутри интервала  $0 < \tau/\tau_u < 1$  и нулю за пределами этого интервала [5]. Формирование прямоугольной огибающей бифотона в случае СПР II типа можно пояснить следующим образом. Пары фотонов рождаются с равной вероятностью по всей длине кристалла. Из-за разных групповых скоростей сигнальные и холостые фотоны выходят из кристалла в разные моменты времени. Фотоны, родившиеся на передней (по отношению к пучку накачки) поверхности кристалла, имеют максимальную задержку друг относительно друга  $\tau_u$ . Фотоны, родившиеся на задней поверхности

кристалла, выходят из него одновременно. Поскольку бифотоны рождаются с равной вероятностью по всей длине кристалла, получаем суперпозицию амплитуд, соответствующих разным задержкам, что и соответствует прямоугольной огибающей бифотона. Детектирование одного из фотонов на выходе из кристалла (в точке  $z = 0$ ) приводит к тому, что второй фотон принимает вид прямоугольного импульса длительности  $\tau_u$ , который либо начинается, либо заканчивается в момент детектирования в зависимости от знака  $\tau_u$ .

## 2. Корреляционные измерения

Предположим, что сигнальный и холостой фотоны, вышедшие из нелинейного кристалла, проходят через линейные оптические системы типа частотных фильтров или пассивных резонансных сред и только затем попадают на фотодетекторы. Тогда временная форма бифотона вычисляется по формуле:

$$F(\tau) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega e^{-i\omega\tau} F(\omega) D_s(\omega) D_i(\omega), \quad (5)$$

где  $D_s(\omega)$  и  $D_i(\omega)$  – частотные функции пропускания линейных систем, установленных в каналах  $s$  (сигнальное поле) и  $i$  (холостое поле) соответственно. Для простоты рассмотрим схему, где один частотный фильтр находится в канале  $s$ , так что  $D_i(\omega) = 1$ . С точки зрения время-разрешенной бифотонной спектроскопии особый интерес представляет случай, когда один из коррелированных фотонов проходит через оптически толстую резонансную среду (рис. 1, а), частотная функция пропускания которой может быть записана следующим образом [6]:

$$D_s(\omega) = \exp\left(-\frac{ib}{\omega + i/T_2}\right), \quad (6)$$

где  $b = \alpha L/2T_2$ ,  $\alpha$  – резонансный коэффициент поглощения,  $L$  – длина резонансной среды,  $T_2$  – время фазовой релаксации. Формула (6) записана в предположении, что центральная частота линии поглощения совпадает с  $\omega_0$ . Подставляя (6) в (5), получим:

$$F(\tau) \propto \frac{1}{\tau_u} \int dt D_s(t) \Pi(\tau - t), \quad (7)$$

где

$$D_s(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega D_s(\omega) e^{-i\omega t} = \delta(t) - \frac{J_1(2\sqrt{bt})}{\sqrt{bt}} \theta(t) e^{-t/T_2}. \quad (8)$$

Предположим, что время разрешения схемы совпадений  $T$  существенно короче времени когерентности бифотонного поля  $\tau_{coh}$ . В этом случае скорость счета совпадений  $R_c$  как функция задержки  $\tau$ , вносимой между сигнальным и холостым фотонами, оказывается пропорциональной функции корреляции второго порядка, так что  $R_c(\tau) \propto |F(\tau)|^2$  [5]. Измерение зависимости  $R_c(\tau)$  дает информацию о форме однофотонного волнового пакета, прошедшего через резонансную среду, которая, в свою очередь, зависит от оптической толщины среды и времени фазовой релаксации (см. рис. 2). При этом функция отклика среды проявляется в корреляционной функции дважды: после переднего и после заднего фронта прямоугольного импульса, играющих роль коротких дельтаобразных импульсов. С увеличением оптической толщины в отклике среды появляются характерные осцилляции амплитуды, обусловленные многократным рассеянием фотона в среде

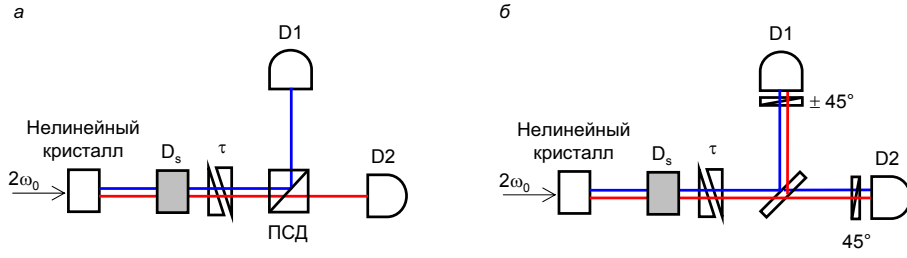


Рис. 1. Схемы измерений, лежащих в основе время-разрешенной бифотонной спектроскопии: *а* – прямое измерение корреляционной функции второго порядка; *б* – наблюдение эффекта антикорреляции (интерферометр Хонга – Оу – Манделя). Предполагается, что резонансная среда с функцией пропускания  $D_s$  взаимодействует с полем только одной поляризации. ПСД – поляризационный светоделитель,  $\tau$  – задержка, вносимая между сигнальным и холостым фотонами

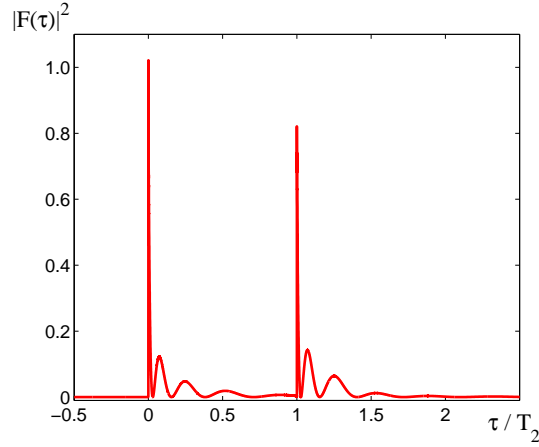


Рис. 2. Типичная зависимость  $|F(\tau)|^2$  (в отн. ед.), иллюстрирующая форму однофотонного волнового пакета, прошедшего оптически толстую резонансную среду. Результат расчета по формуле (7) при  $\tau_u = T_2$  и  $\alpha L = 100$

с приращением фазы каждый раз на  $\pi$ . При этом амплитуда (длительность) первого пика растет (уменьшается) пропорционально оптической толщине, что является характерным признаком процесса сверхизлучательного рассеяния фотона вперед.

Рассмотрим теперь противоположный случай  $T \gg \tau_{\text{coh}}$ . Поскольку непосредственное измерение корреляционной функции второго порядка теперь невозможно, для определения формы однофотонных волновых пакетов, прошедших через резонансную среду, можно воспользоваться эффектом антикорреляции, который наблюдается в интерферометре Хонга – Оу – Манделя [7]. В случае СПР типа II для его наблюдения достаточно установить поляризаторы перед детекторами, ориентируя их под углом  $\pm 45^\circ$  относительно поляризационного базиса фотонов, параллельно или ортогонально друг другу (см., например, [8]). Схема измерения приведена на рис. 1, б. Можно показать [9], что в пределе  $T \gg \tau_{\text{coh}}$ ,

$$R_c \propto \iint_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 |\langle 0 | a_1(\omega_1) a_2(\omega_2) | \psi \rangle|^2. \quad (9)$$

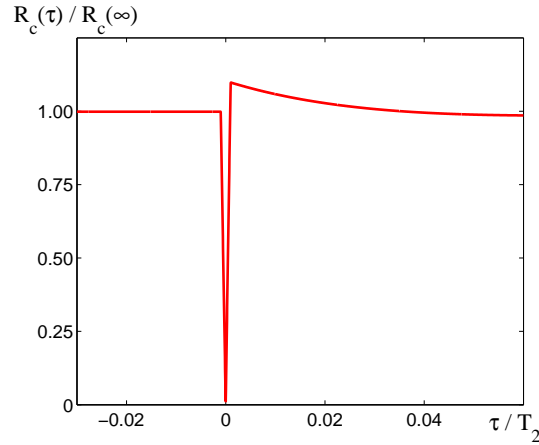


Рис. 3. Провал Хонга–Оу–Манделя. Результат расчета по формуле (11) со знаком «минус» при  $\tau_u = T_2/1000$  и  $\alpha L = 100$

Согласно приведенной схеме имеем следующую связь между операторами уничтожения в модах на выходе из интерферометра  $a_1(\omega_1)$ ,  $a_2(\omega_2)$  и в модах бифотонного поля на выходе из нелинейного кристалла:

$$\begin{aligned} a_1(\omega_1) &= \frac{i}{\sqrt{2}} a_s(\omega_1) D_s(\omega_1) + \frac{i}{\sqrt{2}} a_i(\omega_1) \exp(i\omega_1 \tau), \\ a_2(\omega_2) &= \frac{1}{\sqrt{2}} a_i(\omega_2) \exp(i\omega_2 \tau) \pm \frac{1}{\sqrt{2}} a_s(\omega_2) D_s(\omega_2). \end{aligned} \quad (10)$$

Здесь множители  $i$  учитывают набег фазы при отражении от светоделителя, а знак « $\pm$ » во второй формуле зависит от взаимной ориентации поляризаторов. Подставляя (10) в (9), получаем:

$$\begin{aligned} R_c(\tau) \propto \int d\omega |D(\omega)F(\omega)|^2 + |D(-\omega)F(\omega)|^2 \pm \\ \pm 2|F(\omega)|^2 \Re[D(\omega)D^*(-\omega) \exp(-2i\omega\tau)]. \end{aligned} \quad (11)$$

В отсутствие резонансной среды зависимость  $R_c(\tau)$  имеет характерный вид провала в области  $\tau = 0$ , где скорость счета падает до уровня случайных совпадений (в случае знака «минус» в формуле (11)). Ширина провала определяется временем когерентности бифотонного поля. В присутствии резонансной среды появляется вклад ее импульсной характеристики. Пусть спектральная ширина бифотонного поля намного больше ширины линии поглощения. Тогда с учетом того, что  $D_s^*(-\omega) = D_s(\omega)$ , вклад последнего слагаемого в формуле (11) за пределами провала, то есть в области  $\tau > \tau_{\text{coh}}$ , оказывается пропорциональным свертке  $\int D_s(t)D_s(2\tau - t)dt$  (рис. 3). Аналогичным образом можно рассмотреть другие схемы наблюдения эффекта антикорреляции, например, когда резонансная среда устанавливается в одном из плеч интерферометра Хонга–Оу–Манделя после светоделителя. В этом случае зависимость  $R_c(\tau)$  в области  $\tau > \tau_{\text{coh}}$  может быть пропорциональной импульсной характеристике среды  $D_s(\tau)$ , но при этом появится модуляция на частоте  $\omega_0$ .

### Заключение

Сделан расчет двухфотонной волновой функции бифотонного поля, генерируемого в процессе спонтанного параметрического рассеяния света, для случая, когда сигнальные (или холостые) фотоны проходят через оптически толстую резонансную среду. Показано, что непосредственное измерение корреляционной функции второго порядка позволяет определить форму однофотонного волнового пакета на выходе из резонансной среды, которая, в свою очередь, несет информацию об импульсной характеристике среды, являющейся функцией ее оптической толщины и времени фазовой релаксации на резонансном переходе. Сделан расчет зависимости скорости счета совпадений фотоотсчетов от задержки между сигнальными и холостыми фотонами при наблюдении эффекта антикорреляции в схеме Хонга – Оу – Манделя. Показано, что форма провала, характеризующего данный эффект, определяется либо автокорреляционной функцией импульсного отклика среды, либо самим откликом в зависимости от схемы проведения эксперимента.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 09-02-00206-а), а также программы Президиума РАН «Квантовая физика конденсированного состояния», гранта Президента РФ НШ-5289.2010.2 и Федеральной целевой программы «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009–2013 годы (ГК № 02.740.11.0428).

### Summary

*V.O. Serbinenko, A.A. Kalachev.* Superradiant Scattering Biphoton Spectroscopy.

The applicability of time-resolved correlation measurements by means of biphoton fields generated via spontaneous parametric down-conversion to investigation of single-photon propagation through optically thick resonant media has been analyzed.

**Key words:** spontaneous parametric down-conversion, superradiation, photon.

### Литература

1. Scarcelli G., Valencia A., Gompers S., Shih Y. Remote spectral measurement using entangled photons // *Appl. Phys. Lett.* – 2003. – V. 83, No 26. – P. 5560–5562.
2. Yabushita A., Kobayashi T. Spectroscopy by frequency-entangled photon pairs // *Phys. Rev. A.* – 2004. – V. 69, No 1. – P. 013806-1–013806-4.
3. Kalachev A.A., Kalashnikov D.A., Kalinkin A.A., Mitrofanova T.G., Shkalikov A.V., Samartsev V.V. Biphoton spectroscopy of YAG:Er<sup>3+</sup> crystal // *Laser Phys. Lett.* – 2007. – V. 4, No 10. – P. 722–725.
4. Rubin M.H., Klyshko D.N., Shih Y.H., Sergienko A.V. Theory of two-photon entanglement in type-II optical parametric down-conversion // *Phys. Rev. A.* – 1994. – V. 50, No 6. – P. 5122–5133.
5. Belinsky A.V., Klyshko D.N. Two-photon wave packets // *Laser Phys.* – 1994. – V. 4, No 4. – P. 663–689.
6. Crisp M.D. Propagation of small-area pulses of coherent light through a resonant medium // *Phys. Rev. A.* – 1970. – V. 1, No 6. – P. 1604–1611.
7. Hong C.K., Ou Z.Y., Mandel L. Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference // *Phys. Rev. Lett.* – 1987. – V. 59, No 18. – P. 2044–2046.
8. Kwiat P.G., Steinberg A.M., Chiao R.Y. Observation of a “quantum eraser”: a revival of coherence in a two-photon interference experiment // *Phys. Rev. A.* – 1992. – V. 45, No 11. – P. 7729–7739.

- 
9. *Steinberg A.M., Kwiat P.G., Chiao R.Y.* Dispersion cancellation and high-resolution time measurements in a fourth-order optical interferometer // *Phys. Rev. A.* – 1992. – V. 45, No 9. – P. 6659–6665.

Поступила в редакцию  
15.01.10

---

**Сербиненко Валерия Олеговна** – студент кафедры оптики и нанофотоники Казанского (Приволжского) федерального университета.

E-mail: *valeria.srb@mail.ru*

**Калачёв Алексей Алексеевич** – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

E-mail: *kalachev@kfti.knc.ru*